

I hereby certify that this correspondence is being deposited with the U.S. Postal Service with sufficient postage as First Class Mail, in an envelope addressed to: Commissioner for Patents, Washington, DC 20231, on the date shown below.

Dated: March 8, 2002

Signature: [Signature]

(Arnold H. Krumholz)

COPY OF PAPERS  
ORIGINALLY FILED

1626  
04/14/02

Docket No.: CENTRO 3.0-110  
(PATENT)



IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Patent Application of:  
Colombani et al.

Application No.: 10/055,074

Group Art Unit: 1626

Filed: January 23, 2002

Examiner: Not Yet Assigned

For: PRODUCTION OF HYDROGEN FROM  
GASEOUS HYDROCARBON AND SYSTEM  
USED IN SAID PRODUCTION

TECH CENTER 1600/2900

MAR 21 2002

RECEIVED

CLAIM FOR PRIORITY AND SUBMISSION OF DOCUMENTS

Commissioner for Patents  
Washington, DC 20231

RECEIVED  
MAR 27 2002  
TC 1700

Dear Sir:

Applicant hereby claims priority under 35 U.S.C. 119 based on the following prior foreign application filed in the following foreign country on the date indicated:

Country	Application No.	Date
ITALY	M1200I A 000138	January 26, 2001

In support of this claim, a certified copy of the original foreign application is filed herewith.

Dated: March 8, 2002

Respectfully submitted,

By [Signature]

Arnold H. Krumholz

Registration No.: 25,428

LERNER, DAVID, LITTENBERG,

KRUMHOLZ & MENTLIK, LLP

600 South Avenue West

Westfield, New Jersey 07090

(908) 654-5000

Attorneys for Applicant



RECEIVED

MAR 21 2002

TECH CENTER 1600/2901

**Ministero delle Attività Produttive**  
**Direzione Generale per lo Sviluppo Produttivo e la Competitività**  
**Ufficio Italiano Brevetti e Marchi**  
**Ufficio G2**

**Autenticazione di copia di documenti relativi alla domanda di brevetto per:** Invenzione Industriale

N. MI2001 A 000138

*Si dichiara che l'unita copia è conforme ai documenti originali  
depositati con la domanda di brevetto sopraspecificata, i cui dati  
risultano dall'accluso processo verbale di deposito.*

Roma, li ..... 1 FEB. 2002

RECEIVED

MAR 27 2002

TC 1700

IL DIRIGENTE

*R. P.*

## AL MINISTERO DELL'INDUSTRIA DEL COMMERCIO E DELL'ARTIGIANATO

UFFICIO ITALIANO BREVETTI E MARCHI - ROMA

DOMANDA DI BREVETTO PER INVENZIONE INDUSTRIALE, DEPOSITO RISERVE, ANTICIPATA ACCESSIBILITÀ AL PUBBLICO

MODULO

## A. RICHIEDENTE (I)

1) Denominazione LENTEK S.p.A.  
Residenza Corsico (MI) codice 10704800  
2) Denominazione \_\_\_\_\_  
Residenza \_\_\_\_\_ codice \_\_\_\_\_

## B. RAPPRESENTANTE DEL RICHIEDENTE PRESSO L'U.I.B.M.

cognome nome Ing. MARIETTI Giuseppe cod. fiscale \_\_\_\_\_  
denominazione studio di appartenenza MARIETTI e GISLON S.r.l.  
via Larga n. 16 città Milano cap 20122 (prov) MI

C. DOMICILIO ELETTIVO destinatario //  
via // n. \_\_\_\_\_ città // cap \_\_\_\_\_ (prov) \_\_\_\_\_

## D. TITOLO

classe proposta (sez/cl/scd) \_\_\_\_\_ gruppo/sottogruppo \_\_\_\_\_

"Produzione di idrogeno da metano ed impianto utilizzato in tale procedimento"

## ANTICIPATA ACCESSIBILITÀ AL PUBBLICO:

SI ☐ NO ☒

SE ISTANZA: DATA \_\_\_\_\_

N° PROTOCOLLO \_\_\_\_\_

## E. INVENTORI DESIGNATI

cognome nome

cognome nome

1) COLOMBANI Piero 3) \_\_\_\_\_  
2) CREMONESI Ernesto 4) \_\_\_\_\_

## F. PRIORITÀ

nazione o organizzazione	tipo di priorità	numero di domanda	data di deposito	allegato S/R
1) _____	_____	_____	____/____/____	_____
2) _____	_____	_____	____/____/____	_____

## SCIOGLIMENTO RISERVE

Data \_\_\_\_\_ N° Protocollo \_\_\_\_\_

G. CENTRO ABILITATO DI RACCOLTA CULTURE DI MICRORGANISMI, denominazione \_\_\_\_\_

## H. ANNOTAZIONI SPECIALI

## DOCUMENTAZIONE ALLEGATA

N. es.

Doc. 1) ☒ PROV n. pag. 10 riassunto con disegno principale, descrizione e rivendicazioni (obbligatorio 1 esemplare) ....  
Doc. 2) ☒ PROV n. tav. 10 disegno (obbligatorio se citato in descrizione, 1 esemplare) .....  
Doc. 3) ☒ RIS lettera d'incarico, procura o riferimento procura generale .....  
Doc. 4) ☒ RIS designazione inventore .....  
Doc. 5) ☒ RIS documenti di priorità con traduzione in italiano .....  
Doc. 6) ☒ RIS autorizzazione o atto di cessione .....  
Doc. 7) ☒ nominativo completo del richiedente

8) attestati di versamento, totale lire TRECENTOESSANTACINQUEMILA= obbligatorio

COMPILATO IL 25/01/2001 FIRMA DEL(I) RICHIEDENTE(I) Ing. MARIETTI Giuseppe

CONTINUA SI/NO NO

DEL PRESENTE ATTO SI RICHIEDE COPIA AUTENTICA SI/NO SI

UFFICIO PROVINCIALE IND. COMM. ART. DI MILANO codice 15

VERBALE DI DEPOSITO NUMERO DI DOMANDA MI2001A 000138 Reg. A.

L'anno duemilauno DUEMILAUNO del mese di GENNAIO

il(i) richiedente(i) sopradichieduto(i) ha(hanno) presentato a me sottoscritto la presente domanda, corredata di \_\_\_\_\_ fogli aggiuntivi per la concessione del brevetto soprariportato.

I. ANNOTAZIONI VARIE DELL'UFFICIALE ROGANTE \_\_\_\_\_

IL DEPOSITANTE  
G. di G. di G.

dell'Ufficio

M. CORTONESI

RIASSUNTO INVENZIONE CON DISEGNO PRINCIPALE, DESCRIZIONE E RIVENDICAZIONE

NUMERO DOMANDA

MI 2001 A000138

REG. A

DATA DI DEPOSITO

26/01/2001

NUMERO BREVETTO

DATA DI RILASCIO

/ /

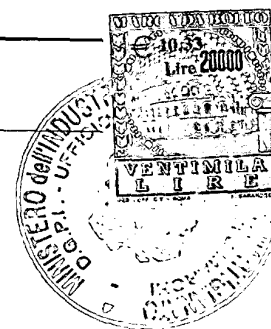
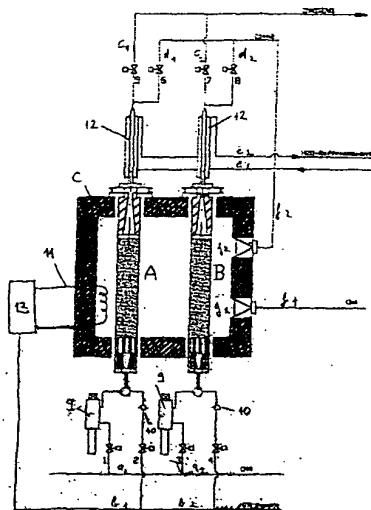
## D. TITOLO

"Procedimento di idrogeno da metano ed impianto utilizzato in tale procedimento"

## L. RIASSUNTO

Procedimento ed impianto per la produzione di idrogeno da metano, in cui il metano viene decomposto ad elevata temperatura in presenza di un catalizzatore fornendo idrogeno e carbonio. Il carbonio che tende ad inquinare il catalizzatore viene eliminato mediante una fase di rigenerazione del catalizzatore con vapore d'acqua, che genera un gas di reazione riutilizzabile come fonte di energia.

## M. DISEGNO



Ing. G. Marietti (n. iscr. 175)  
Dr. G. Cisoni (n. iscr. 512)  
Ing. G. Valentini (n. iscr. 535)

MI 2001A000138

Descrizione dell'invenzione che ha per titolo:

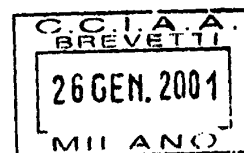
"PRODUZIONE DI IDROGENO DA METANO ED IMPIANTO UTILIZZATO IN  
TALE PROCEDIMENTO"

a nome: LENTEK S.p.A., di nazionalità italiana

con sede in: CORSICO (MI)

Inventori: - COLOMBANI Piero

- CREMONESI Ernesto



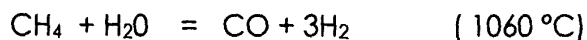
\*\*\*\*\*

La presente invenzione riguarda un procedimento ed un impianto per la produzione di idrogeno mediante decomposizione catalitica del metano.

In particolare l'invenzione riguarda un procedimento ed un impianto per la produzione di idrogeno mediante decomposizione catalitica del metano e successiva rigenerazione del catalizzatore in una o più storte. Il catalizzatore utilizzato è poroso impregnato con nichel al 7%.

L'idrogeno viene utilizzato in grande quantità per produrre energia e calore ed è l'unico combustibile che durante la sua combustione produce sostanze non inquinanti. Inoltre, esso viene utilizzato nella sintesi di composti organici.

Il procedimento chimico oggi più noto e ampiamente utilizzato per la produzione industriale dell'idrogeno è il reforming del metano con vapore d'acqua, secondo la seguente reazione.



Il gas di reazione ( $\text{CO} + 3\text{H}_2$ ) richiede la separazione del CO dall'idrogeno, che si effettua riducendo la temperatura (preferibilmente

in una apposita storta ad una temperatura compresa tra 300 °C e 600 °C), secondo la seguente reazione:



Il biossido di carbonio è quindi eliminato con setacci molecolari o con altre tecniche difficili, incerte e costose.

Il carbone prodotto si deposita sotto forma di fuliggine sul fondo della storta e deve essere eliminato, con continuità tramite coclea o periodicamente pulendo la storta.

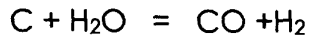
Scopo pertanto della presente invenzione è di fornire un procedimento, nonché un impianto per la produzione d'idrogeno da metano che consenta una produzione economica e senza problemi per la separazione dei gas CO e idrogeno, nonché eventualmente senza interruzioni per la pulizia della storta.

Secondo la presente invenzione, questo scopo è stato raggiunto mediante decomposizione catalitica (cracking) del metano e rigenerazione del catalizzatore utilizzando una o più storte, con il riutilizzo dei gas di reazione provenienti dalla rigenerazione del catalizzatore.

Il procedimento per la produzione di idrogeno secondo la presente invenzione, comprende una decomposizione catalitica del metano ad elevata temperatura secondo la seguente reazione:



E la rigenerazione del catalizzatore con vapore d'acqua preferibilmente alla stessa temperatura di cracking, che comporta l'eliminazione del carbone depositato sul catalizzatore, secondo l'equazione:



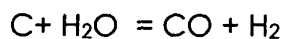
Il cracking del metano avviene ad una temperatura compresa tra i 1000 e 1100 °C, in una storta riempita con cubetti di refrattario imbevuti di Nichel che agisce da catalizzatore nel procedimento.

L'idrogeno generato durante il cracking del metano può essere raffreddato e stoccato.

Il carbone, sotto forma di polvere finissima, si deposita sui cubetti di catalizzatore impregnati di nichel, ricoprendoli man mano e diminuendo così la loro efficacia.

L'attività del catalizzatore viene controllata durante il procedimento mediante la rilevazione e la misurazione del metano non crackizzato all'uscita della storta. Nel momento in cui dalla storta esce una quantità di metano predeterminata massima, la storta passa nella fase di rigenerazione.

Nella fase di rigenerazione del catalizzatore viene alimentato vapore d'acqua nella storta, il quale reagisce con il carbone depositato secondo la seguente reazione:



Tale reazione continua fino a quando tutto il carbone depositato sui cubetti di catalizzatore durante il cracking viene trasformato in CO, ovvero fino a quando l'analizzatore rileva la presenza di CO nei gas in uscita dalla storta.

Successivamente la storta contenente il catalizzatore rigenerato ritorna di nuovo nella fase di produzione di idrogeno.

Il gas di reazione (CO+ H<sub>2</sub>) della fase di rigenerazione del catalizzatore



viene riutilizzato senza separazione dei componenti, come combustibile, ad esempio per il riscaldamento del generatore stesso. Nel procedimento secondo la presente invenzione, vengono di preferenza utilizzate due storte, mantenute alla temperatura di reazione in un'unica camera calda dotata di bruciatori ad autorecupero alimentati a metano.

Ciascuna delle due storte è provvista di un flussometro per la misurazione del flusso di metano e di un regolatore di portata del vapore d'acqua. Le storte operano alternativamente in generazione d'idrogeno ed in rigenerazione del catalizzatore, consentendo in questo modo una produzione di idrogeno in continuo. A seconda del modo di operare di ciascuna storta, viene aperta la valvola di alimentazione del metano (per la storta in generazione di idrogeno) o del vapore d'acqua (per la storta in rigenerazione del catalizzatore).

Nella camera calda è previsto l'inserimento di uno scambiatore di calore da utilizzarsi per la generazione del vapore d'acqua necessario nella fase di rigenerazione del catalizzatore. Un tale scambiatore di calore può essere per esempio una serpentina. In questo modo, viene utilizzato il calore generato per il riscaldamento delle storte nella camera calda, ottenendo un risparmio d'energia aggiuntivo.

Le due estremità delle storte sono isolate termicamente mediante un apposito tappo.

Uno schema d'impianto secondo la presente invenzione è riportato all'unica figura allegata, fornita a puro titolo di esempio non limitativo.

Nella figura, con A e B sono indicate due storte riempite di cubetti di



catalizzatore al 7 % di nichel.

Con C è indicata la camera calda, che racchiude le due storte A e B. La camera è riscaldata da gas combustibile che vi entra attraverso i mezzi di alimentazione  $f_1$  e  $f_2$ , dotati di bruciatori  $g_1$  e  $g_2$ .

Le storte A e B vengono alimentate con un flusso di metano attraverso il condotto (mezzo di alimentazione)  $a_1$  o  $a_2$ , oppure con un flusso di vapore d'acqua attraverso il condotto  $b_1$  o  $b_2$ , in funzione della loro modalità operativa (generazione di idrogeno o rigenerazione del catalizzatore).

Il flusso del metano alimentato nella storta durante la fase di cracking viene misurato con un flussometro 9, mentre la quantità di vapore d'acqua alimentata per la rigenerazione del catalizzatore viene regolata con un regolatore di portata 10.

La valvola 1 o 3 collega la storta (A o B) con il flusso di metano per la fase di generazione, mentre la valvola 2 o 4 collega la storta (A o B) con il flusso di vapore d'acqua per la fase di rigenerazione del catalizzatore.

Il metano ed il vapore d'acqua entrano nella storta attraverso un diffusore dotato di fori.

La valvola 5 o 7 controlla l'uscita dell'idrogeno generato attraverso il condotto  $c_1$  o  $c_2$ . La valvola 6 o 8 controlla l'uscita del gas ( $\text{CO} + \text{H}_2$ ), proveniente dalla fase di rigenerazione del catalizzatore, attraverso il condotto  $d_1$  o  $d_2$  per il suo riutilizzo, preferibilmente nel procedimento secondo la presente invenzione, come fonte di energia.

Con 12 è indicato uno scambiatore di calore per raffreddare i gas

prodotti nel procedimento secondo la presente invenzione. L'acqua di raffreddamento che circola nello scambiatore di calore 12 entra attraverso i condotti di alimentazione  $e_1$  ed esce dallo scambiatore di calore attraverso i condotti di trasporto  $e_2$ .

In una realizzazione alternativa preferita dell'impianto secondo la presente invenzione, tale impianto è provvisto anche di uno scambiatore di calore 11 collegato al generatore di vapore d'acqua 13 utilizzato per la rigenerazione del catalizzatore.

A scopo illustrativo sono riportati di seguito alcuni risultati ottenuti secondo una realizzazione pilota della presente invenzione, con una sola storta, alternativamente in fase di produzione ed in fase di rigenerazione. La produzione di idrogeno ottenibile con l'utilizzo di una sola storta è risultata di 10 mc/h con una alimentazione di metano pari a 5 mc/h.

Viene prodotto idrogeno per un'ora, per poi passare alla fase di rigenerazione che si può considerare terminata quando l'analizzatore di CO mostra un valore inferiore all'1%.

Utilizzando due storte è possibile produrre idrogeno da metano senza interruzioni; mentre una è in produzione di idrogeno, l'altra è in rigenerazione.

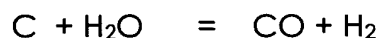
La presente invenzione, inoltre, consente un risparmio di energia mediante il riutilizzo del gas ( $CO + H_2$ ) proveniente dalla fase di rigenerazione del catalizzatore, come combustibile per il mantenimento della temperatura nella camera calda.

## RIVENDICAZIONI

1. Procedimento per la produzione di idrogeno da metano, caratterizzato dal fatto di comprendere una fase di generazione di idrogeno, in cui il metano viene decomposto in presenza di un catalizzatore ad elevata temperatura, secondo la seguente reazione:



e una fase di rigenerazione del catalizzatore con vapore d'acqua, con eliminazione del carbone depositato sul catalizzatore, secondo la reazione:



in cui il gas di reazione ( $\text{CO} + \text{H}_2$ ) proveniente dalla fase di rigenerazione del catalizzatore, viene riutilizzato come fonte di energia.

2. Procedimento secondo la rivendicazione 1, caratterizzato dal fatto che il gas di reazione proveniente dalla fase di rigenerazione del catalizzatore viene riutilizzato come fonte di energia nel procedimento stesso.

3. Procedimento secondo la rivendicazione 1 o 2, caratterizzato dal fatto che le due fasi vengono effettuate parallelamente, in almeno due storte che funzionano alternativamente in generazione di idrogeno ed in rigenerazione del catalizzatore.

4. Procedimento secondo la rivendicazione 1, 2 o 3, caratterizzato dal fatto che la temperatura della fase di cracking è compresa tra 1000 °C e 1100 °C.

5. Procedimento secondo la rivendicazione 1, 2 o 3, caratterizzato dal fatto che la o le storte sono riempite o rivestite con cubetti di

Ing. G. Moratti (n. iscr. 175)  
Dr. G. ... (n. iscr. 513)  
Ing. G. Valentini (n. iscr. 520)



refrattario fungente da catalizzatore.

6. Procedimento secondo la rivendicazione 5, caratterizzato dal fatto che il catalizzatore è a base di nichel

7. Procedimento secondo la rivendicazione 1, 2 o 3, caratterizzato dal fatto che l'idrogeno ottenuto viene raffreddato e stoccato.

8. Procedimento secondo la rivendicazione 2, caratterizzato dal fatto che il gas di reazione proveniente dalla fase di rigenerazione è utilizzato per la generazione di vapore d'acqua e/o per il riscaldamento della o delle storte.

9. Impianto per la produzione di idrogeno da metano secondo il procedimento della rivendicazione 1 o 2, caratterizzato dal fatto di comprendere:

- una storta (A o B)
- una camera calda (C) che racchiude la storta;
- mezzi di alimentazione di metano ( $a_1$ ,  $a_2$ ) alla storta;
- mezzi di alimentazione di vapore d'acqua ( $b_1$ ,  $b_2$ ) alla storta;
- mezzi di alimentazione di gas combustibile ( $f_1$ ) ad un bruciatore ( $g_1$ ) della camera calda;
- mezzi per alimentare il gas di rigenerazione ad un generatore di calore esterno e/o ad un generatore di vapore e/o ad un bruciatore ( $g_2$ ) nella camera calda.

10. Impianto per la produzione di idrogeno da metano secondo il procedimento della rivendicazione 3, caratterizzato dal fatto di comprendere:

- due storte (A e B);

- una camera calda (C) che racchiude le storte;
- mezzi di alimentazione di metano ( $a_1$ ,  $a_2$ ) alternativamente alle storte;
- mezzi di alimentazione di vapore d'acqua alternativamente ( $b_1$ ,  $b_2$ ) alle storte;
- mezzi di alimentazione di gas combustibile ( $f_1$ ) ad un bruciatore ( $g_1$ ) della camera calda;
- mezzi per alimentare il gas di rigenerazione ad un generatore di calore esterno e/o ad un generatore di vapore e/o ad un bruciatore ( $g_2$ ) nella camera calda.

11. Impianto, secondo la rivendicazione 9 o 10, caratterizzato dal fatto che la o le storte utilizzino cubetti di refrattario impregnati di nichel come catalizzatori.

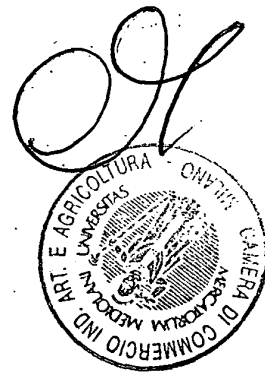
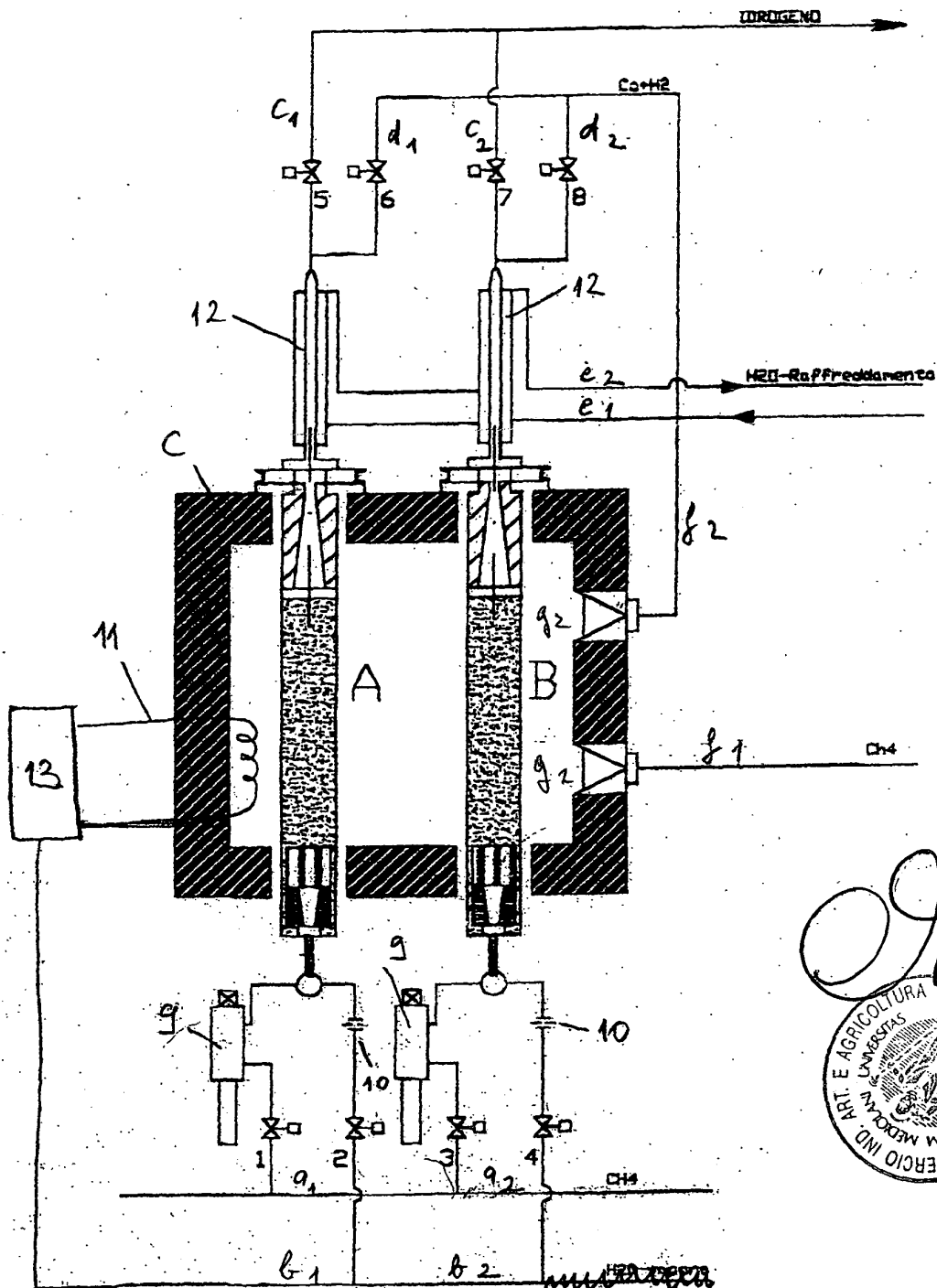
12. Impianto secondo la rivendicazione 9 o 10, caratterizzato dal fatto che la camera calda (C) è provvista di uno scambiatore di calore (11) collegato ad un generatore di vapore d'acqua. (13).

13. Impianto secondo la rivendicazione 9 o 10, caratterizzato dal fatto di comprendere, all'uscita della o delle storte, uno scambiatore di calore (12) per il raffreddamento dei gas prodotti.

Ing. G. Marietti (n. iscr. 175)  
Dr. G. Valentini (n. iscr. 513)  
Ing. G. Valentini (n. iscr. 539)



MI 200 1A 000 138



Ing. G. Mariotti (n. iscr. 175)  
 Ing. G. Valentini (n. iscr. 513)  
 Ing. G. Valentini (n. iscr. 539)